

特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

REC'D 04 JAN 2005

WIPO

PCT

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 E05111USPCT	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP03/16542	国際出願日 (日.月.年) 24.12.2003	優先日 (日.月.年) 25.12.2002
国際特許分類 (IPC) Int. C17 C22C33/02, 45/02 B22F3/14, 9/08, H01F1/22		
出願人（氏名又は名称） 独立行政法人科学技術振興機構		

<p>1. この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。 法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。</p> <p>2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>3</u> ページからなる。</p> <p>3. この報告には次の附属物件も添付されている。 a <input checked="" type="checkbox"/> 附属書類は全部で <u>10</u> ページである。 <input checked="" type="checkbox"/> 振正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面の用紙（PCT規則70.16及び実施細則第607号参照） <input type="checkbox"/> 第I欄4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙 b <input type="checkbox"/> 電子媒体は全部で _____ (電子媒体の種類、数を示す)。 配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するデータを含む。（実施細則第802号参照）</p> <p>4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第I欄 国際予備審査報告の基礎 <input type="checkbox"/> 第II欄 優先権 <input type="checkbox"/> 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 <input type="checkbox"/> 第IV欄 発明の単一性の欠如 <input checked="" type="checkbox"/> 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 <input type="checkbox"/> 第VI欄 ある種の引用文献 <input type="checkbox"/> 第VII欄 国際出願の不備 <input type="checkbox"/> 第VIII欄 国際出願に対する意見</p>

国際予備審査の請求書を受理した日 26.07.2004	国際予備審査報告を作成した日 10.12.2004
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 小川 武 電話番号 03-3581-1101 内線 3435

第 I 構 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

この報告は、_____語による翻訳文を基礎とした。
それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査

PCT規則12.4にいう国際公開

PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。（法第6条（PCT14条）の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。）

□ 出願時の国際出願書類

明細書

第 1, 2, 5, 6, 8, 10-20 ページ、出願時に提出されたもの
第 3, 3/1, 4, 4/1, 7, 7/1, 9 ページ*、26.07.2004 付けで国際予備審査機関が受理したもの
第 ページ*、 付けで国際予備審査機関が受理したもの

請求の範囲

第 3, 6	項、出願時に提出されたもの
第 4, 5	項*、PCT19条の規定に基づき補正されたもの
第 1, 2	項*、26. 07. 2004 付けで国際予備審査機関が受理したもの
	項*、08. 11. 2004 付けで国際予備審査機関が受理したもの

面

第 1-8 ページ/図、出願時に提出されたもの
第 _____ ページ/図*、_____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
第 _____ ページ/図*、_____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

□ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. 補正により、下記の書類が削除された。

<input type="checkbox"/>	明細書	第	_____	ページ
<input type="checkbox"/>	請求の範囲	第	_____	項
<input type="checkbox"/>	図面	第	_____	ページ/図
<input type="checkbox"/>	配列表 (具体的に記載すること)	_____		
<input type="checkbox"/>	配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること)	_____		

4. この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出席時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

明細書 第 _____ ページ
 請求の範囲 第 _____ 項
 図面 第 _____ ページ/図
 配列表 (具体的に記載すること) _____
 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 2-6	有
	請求の範囲 1	無
進歩性 (I S)	請求の範囲	有
	請求の範囲 1-6	無
産業上の利用可能性 (I A)	請求の範囲 1-6	有
	請求の範囲	無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

文献1 JP 2001-338808 A(アルプラス電気株式会社) 2001.12.07

文献2 Baolong Shen et.al, "Preparation of Fe65Co10Ga5P12C4B4 Bulk Glass Alloy with Good Soft Magnet Properties by Spark-Plasma Sintering of Glassy Powder" Materials Transactions Vol. 43 no. 8 2002 August

請求の範囲1について

請求の範囲1に係る発明は、国際調査報告に記載された文献1から新規性及び進歩性を有さない。文献1の指摘箇所及び第37欄第19-22行には、この出願の請求の範囲1と重複する組成、粒径の軟磁性金属ガラス粉末を焼結することが記載されており、焼結後にパルク形状となることは明らかである。また、結晶化温度や液相線温度という、金属ガラスに内在する物性値を確認したことに基づく実質的差異はない。

請求の範囲2について

請求の範囲2に係る発明は、国際調査報告に記載された文献1及び文献2から進歩性を有さない。

文献1の指摘箇所には、573K以上結晶化開始温度以下という範囲と573Kで重複する、焼結温度573K以下とすることについては記載されているが、焼結時相対密度について記載されていない点で請求の範囲2と相違する。しかし、焼結密度の選定は、文献1と金属ガラスという技術分野を同じくする文献2の指摘箇所に記載されており、当業者が容易に想到しうるものである。

また、保持力や比抵抗という、軟磁性材料に通常要求される物性値を確認したことに基づく実質的差異はない。

請求の範囲4について

請求の範囲4に係る発明は、国際調査報告に記載された文献1及び文献2から進歩性を有さない。

文献1の指摘箇所には、粒子をアトマイズ法により製造することについても記載されている。

請求の範囲5について

請求の範囲5に係る発明は、国際調査報告に記載された文献1及び文献2から進歩性を有さない。

文献2の指摘箇所には、放電プラズマ焼結時の昇温速度についても記載されている。

請求の範囲3、6について

請求の範囲3、6に係る発明は、国際調査報告に記載された文献1及び文献2から進歩性を有さない。

文献1の指摘箇所には、焼結後の熱処理温度についても記載されている。

1 許文献 6) 。

最近では、過冷却液体域を有する金属ガラス合金の粉体が焼結されてなる金属ガラス焼結体が提案されている。この金属ガラス焼結体は、バルク状の焼結体であって、その形状が限定されないので、磁気ヘッド、トランス、モータのコアなどに好適に用いることができる (特許文献 7 ~ 10) 。

本発明者らは、先に、Fe-(Ti, Zr, Hf, V, Nb, Ta, Mo, W)-B系、Fe-Al-Ga-P-C-B-Si系、Fe-Co-Ni-(Zr, Nb)-B系等の非晶質合金を主体とする粒子を放電焼結した鉄基軟磁性金属ガラス焼結体及び放電プラズマ焼結法によるその製造方法を発明し、特許出願した (特許文献 11 ~ 13)。また、本発明者らは、Fe-Al-Ga-P-C-B-Si系などの非晶質合金の板状粒子を 693 ~ 713K の温度範囲で焼結した Fe 基軟磁性金属ガラス焼結体を発明し、特許出願した (特許文献 14)。さらに、本発明者らは、Fe-Co-Ga-P-C-B系の非晶質合金を主体とするガスアトマイズ法で作製した粒径 10 ~ 30 μm の粒子を放電焼結した鉄基軟磁性金属ガラス焼結体について報告した (非特許文献 1 ~ 3)。

さらに、金属ガラス焼結体の製造例ではないが、Fe-Al-Ga-P-C-Bi-Si や Fe-Ga-P-C-Bi-Si 系の粒径 30 ~ 300 μm の金属ガラス粉末に 0.2 ~ 5 重量% のエポキシ樹脂、シリコーン樹脂、水ガラスなどの絶縁材を加えて混合し、373K 以上 573K 以下の温度範囲でこの混合物を圧縮成形することにより絶縁材を適度に軟化させて金属ガラス合金の粉末を結着させて混合物を所定の形状に成形して、
20 圧粉磁心を製造する方法が知られている (特許文献 15)。

特許文献 1 特開平 8-333660 号公報

特許文献 2 特開平 9-320827 号公報

3/1

1 特許文献3 特開平11-71647号公報

特許文献4 特開2001-152301号公報

特許文献5 特開2001-316782号公報

特許文献6 特開2002-226956号公報

5 特許文献7 特開平11-73608号公報

特許文献8 特開平11-73609号公報

10

15

20

1 特許文献 9 特開平 11-74109 号公報

特許文献 10 特開平 11-74111 号公報

特許文献 11 特開平 8-337839 号公報

特許文献 12 特開平 10-92619 号公報

5 特許文献 13 特開平 11-71648 号公報

特許文献 14 特開 2000-345308 号公報

特許文献 15 特開 2001-338808 号公報

非特許文献 1 沈 宝龍他「放電プラズマ焼結法による Fe-Co-Ga-P-C-B ガラス合

金粉末のバルク化とその磁気特性」, 粉体及び粉末冶金, 第48巻, 第9号, 2001年9月,

10 pp. 858-862

非特許文献 2 Balong Shen et al. 「Preparation of Fe₆₅Co₁₀Ga₅P₁₂C₄B₄ Bulk G1

assy Alloy with Good Soft Magnetic Properties by Spark-Plasma Sintering

of Glassy Powder」, Materials Transactions, Vol. 43, No. 8, p. 1961-1965 (200

2)

15 非特許文献 3 沈 宝龍他「放電プラズマ焼結法による Fe₆₅Co₁₀Ga₅P₁₂C₄B₄ 金属ガ

ラス磁気コアの作製」, 「粉体粉末冶金協会講演概要集」, 2002年11月, 第196

頁

発明の開示

20 (発明が解決しようとする課題)

アモルファス合金薄帯を機械的に粉碎して得られた合金粉末を焼結してバルク
形状に固化成型する方法が開発されているが、焼結の際に原料粉末が結晶化しな

4/1

1 いように比較的低温で焼結しなければならず、また、機械的に粉碎したものであ

5

10

15

20

1 度の遅い噴霧法によって粒径の大きな球状金属ガラス合金粒子を得ることと、こ
の球状金属ガラス合金粒子を用いて高圧力を加えてプラズマ放電焼結することに
より相対密度が 99.0% 以上の金属ガラス相からなる高密度焼結体を製作する
ことにより、非常に優れた軟磁性特性を有する金属ガラスからなるバルク状の Fe
5 e 基焼結合金軟磁性材料を提供するものである。

本発明の非晶質軟磁性合金焼結体を製造するための金属ガラスは、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ (ただし、 T_x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。) の式で
表される過冷却液体の温度間隔 ΔT_x が 25 K 以上、さらに好ましくは 40 K 以上
を有し、かつ T_g/T_1 (ただし、 T_g はガラス遷移温度、 T_1 は液相線温度を示
10 す。) の式で表される換算ガラス化温度が 0.59 以上であるため、高圧ガス噴
霧法により金属ガラス単相の球状合金粒子が簡単に製造でき、真球状に近い球状
合金粒子が得られる。

すなわち、本発明は、(1) 噴霧法によって得られた、粒径が 30 μm 以上 12
5 μm 以下であって、組成が原子% で、Ga : 0.5 ~ 10%，P : 7 ~ 15%，
15 C : 3 ~ 7%，B : 3 ~ 7%，Si : 1 ~ 7%，Fe : 残部である Fe 基金属ガ
ラス合金からなることを特徴とする金属ガラスからなるバルク状の Fe 基焼結
合金軟磁性材料製造用の球状粒子である。

また、本発明は、(2) 上記の金属ガラス合金の球状粒子が 573 K 以上で焼
結されてなる相対密度が 99.0% 以上である金属ガラス相の高密度焼結体から
20 なり、かつ焼結のままで 3900 (μ_{max}) 以上の透磁率と 19 (A/m) 以下の保
磁力 (Hc) を持つ Fe 基合金軟磁性材料であって、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ (ただし、 T_x
x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。) の式で表される過冷却液体

7/1

1 の温度間隔 ΔT_x が25K以上を有し、かつ T_g/T_1 （ただし、 T_g はガラス遷移温度、 T_1 は液相

5

10

15

20

1 が 7 原子%を越えると Si の量が過剰になり、過冷却液体領域 ΔT_x が消滅する
おそれがあるので好ましくない。

さらに、本発明は（3）上記（2）の金属ガラスからなるバルク状の Fe 基焼
結合金軟磁性材料を 573～723K の温度範囲で熱処理した 7000 (μ_{max})
5 以上の透磁率と 12 (A/m) 以下の保磁力 (Hc) を持つことを特徴とする金属ガ
ラスからなるバルク状の Fe 基焼結合金軟磁性材料、である。

さらに、本発明は、（4）組成が原子%で、Ga : 0.5～10%，P : 7～
15%，C : 3～7%，B : 3～7%，Si : 1～7%，Fe : 残部となるよう
に溶製した合金の溶湯をノズルから滴下又は噴出し、該溶湯に高速ガスを噴霧す
10 ることによって液滴を急冷凝固することによりアモルファス相を持つ最大粒子径
が 30 μm 以上 125 μm 以下の Fe 基金属ガラス合金粒子を得ることを特徴とす
る上記（1）の球状粒子を製造する方法、である。

さらに、本発明は（5）上記（4）記載の方法によって得られた粒径 30 μm 以
上 125 μm 以下の金属ガラス合金の球状粒子を放電プラズマ焼結法により、昇温
15 速度 40K/分以上で昇温し、焼結温度を、573K 以上、かつ、結晶化開始温度
 T_x 、焼結温度を T とした場合に $T \leq T_x$ の関係を満足する温度範囲とし、20
0 MPa 以上の圧力下で焼結することを特徴とする上記（2）の Fe 基焼結合金軟
磁性材料の製造方法、である。

さらに、本発明は（6）焼結後 573～723K の温度範囲で熱処理することを
20 特徴とする上記（5）の金属ガラスからなるバルク状の Fe 基焼結合金軟磁性材
料の製造方法、である。

本発明の Fe 基焼結合金軟磁性材料は、室温において軟磁性を有し、1.3～

1

請求の範囲

1. (補正後) 噴霧法によって得られた、粒径が $30 \mu\text{m}$ 以上 $125 \mu\text{m}$ 以下の球状粒子であって、組成が原子%で、 Ga : 0.5 ~ 10%, P : 7 ~ 15%, C : 3 ~ 7%, B : 3 ~ 7%, Si : 1 ~ 7%, Fe : 残部であり、結晶化開始温度 T_x が $770 \sim 800\text{K}$ 、液相線温度 T_1 が $1220 \sim 1300\text{K}$ である Fe 基金属ガラス合金からなることを特徴とする金属ガラスからなるバルク状の Fe 基焼結合金軟磁性材料製造用の球状粒子。
2. (補正後) 請求の範囲第1項記載の Fe 基金属ガラス合金の球状粒子が 573K 以上結晶化開始温度以下で焼結されてなる相対密度が 99.0% 以上である
10 金属ガラス相の高密度焼結体からなり、かつ焼結のままで $3900\text{ }(\mu\text{max})$ 以上の透磁率と $19\text{ }(\text{A}/\text{m})$ 以下の保磁力 (Hc) と $1.6\mu\Omega\text{m}$ 以上の比抵抗とを持つ
Fe 基合金軟磁性材料であって、 $\Delta T_x = T_x - T_g$ (ただし、 T_x は結晶化開始温度、 T_g はガラス遷移温度を示す。) の式で表される過冷却液体の温度間隔 ΔT_x
が 25K 以上を有し、かつ T_g/T_1 (ただし、 T_g はガラス遷移温度、 T_1 は液相
15 線温度を示す。) の式で表される換算ガラス化温度が 0.59 以上であることを
特徴とする金属ガラスからなるバルク状の Fe 基焼結合金軟磁性材料。
3. 請求の範囲第2項記載の金属ガラスからなるバルク状の Fe 基焼結合金軟磁性材料を $573 \sim 723\text{K}$ の温度範囲で熱処理した $7000\text{ }(\mu\text{max})$ 以上の透磁率と $12\text{ }(\text{A}/\text{m})$ 以下の保磁力 (Hc) を持つことを特徴とする金属ガラスからなる
20 バルク状の Fe 基焼結合金軟磁性材料。
4. 組成が原子%で、 Ga : 0.5 ~ 10%, P : 7 ~ 15%, C : 3 ~ 7%,
B : 3 ~ 7%, Si : 1 ~ 7%, Fe : 残部となるように溶製した合金の溶湯を

21/1

1 ノズルから滴下又は噴出し、該溶湯に高速ガスを噴霧することによつ

5

10

15

20

1 て液滴を急冷凝固することによりアモルファス相を持つ最大粒子径が $30 \mu\text{m}$ 以上
125 μm 以下の Fe 基金属ガラス合金粒子を得ることを特徴とする請求の範囲第
1 項記載の球状粒子を製造する方法。

5 5. (補正後) 請求の範囲第 4 項記載の方法によって得られた粒径 $30 \mu\text{m}$ 以上 1
25 μm 以下の球状金属ガラス合金粒子を放電プラズマ焼結法により、昇温速度 4
0K/分以上で昇温し、焼結温度を、573K以上、かつ、結晶化開始温度 T_x 、
焼結温度を T とした場合に $T \leq T_x$ の関係を満足する温度範囲とし、200MP
a 以上の圧力下で焼結することを特徴とする請求の範囲第 2 項記載の Fe 基焼結
金軟磁性材料の製造方法。

10 6. 焼結後 573 ~ 723K の温度範囲で熱処理することを特徴とする請求の範囲
第 5 項記載の金属ガラスからなるバルク状の Fe 基焼結合金軟磁性材料の製造方
法。

15

20